

*Teaduspreemia täppisteaduste alal uurimuste tsükli  
"Atmosfääri aerosooli ja aeroioonide tekkeprotsesside ja evolutsiooni  
uurimine, aeroioonide liikuvusspektromeetria meetodite ja aparatuuri  
arendamine" eest*



*Hannes Tammet*

Sündinud 05.08.1937 Tallinnas

1954 Märjamaa Keskkool  
1959 Tartu Ülikool, füüsika  
1964 füüsika-matemaatikakandidaat, Tartu Ülikool  
1979 füüsika-matemaatikadoktor, Geofüüsika Peaobservatoorium (Leningrad)  
1956–1959 Tartu Ülikooli laborant või samaväärse ametikoha täitja  
1959–1967 Tartu Ülikooli füüsikakateedri assistent, aspirant, vanemõpetaja  
1967–1983 Tallinna Pedagoogilise Instituudi füüsikakateedri dotsent, vanemteadur, professor  
1983–2002 Tartu Ülikooli laboratooriumi juhataja, peateadur, professor  
2002– Tartu Ülikooli emeriitprofessor ja erakorraline vanemteadur  
1995–1996 Minnesota Ülikooli külalisteadur (Fulbrighti stipendium)  
1998–1999 Uppsala Ülikooli külalisprofessor (Visby grant)  
1967 Eesti NSV teaduspreemia aeroioonide uurimuste alal autorite kollektiivi liikmena  
Rahvusvahelise atmosfäärielektrikomisjoni auliige  
Avaldanud 200 teadusartiklit ja 9 monograafiat ning käsiraamatut

## SISSEJUHATUS

Aeroioonid on üldsusele tuntud eelkõige aeroionisaatoriteks nimetatud aparatuuride reklaamide järgi, mille taga on tootjate ja edasimüüjate kommertshuvid. Aastakümneid tagasi populaarne uurimisteema aeroioonide oletatavast otsesest bioloogilisest mõjust [vt Charry, Kavet, 1987] on usaldusväärsete tulemuste puudumisel unustusse jäänud. Ometi on huvi aeroioonide vastu teaduses viimasel ajal tõusnud, põhjuseks aeroioonide osa atmosfääriõhus mikrotasandil toimuvates protsessides. Seda mõistmata pole võimalik aru saada pilvkatte kujunemisest ja inimtegevuse mõjust Maakera kliimale.

Füüsiku jaoks tähistab termin “ioon” tavaliselt puuduva elektroniga aatomit. Kui Michael Faraday kreeka sõna *ιον* 1834. aastal füüsikasse tõi, tähistas ta sellega elektriväljas liikuvat ja laengut kandvat osakest üldse. Aeroioon on õhu elektrijuhtivust põhjustav laetud osake, mis koosneb pea alati paljudest molekulidest. Õhu loodusliku elektrijuhtivuse avastas 90 aastat enne termini “ioon” kasutusele võtmist Eestist pärit füüsik Georg Wilhelm Richmann, kes töötas Peterburis. Eestis alustas õhu elektrijuhtivuse uurimist 1937 aastal Anatoli Mitt [Mitt, 1946] ja atmosfäärifüüsikas nimetatakse õhu looduslikku elektrijuhtivust põhjustavaid aeroioone sageli pikema nimega atmosfääri ioonideks.

Lühiülevaate atmosfääri ionidest võib leida artiklitest [Tammet, 1998; Harrison, Tammet, 2008]. Juhtme eritakistust iseloomustatakse tehnikas  $1 \text{ mm}^2$  ristlõikega  $1 \text{ m}$  pikkuse juhtme takistusega. Vase jaoks on see *ca*  $0,017$  oomi, maapinnalähedase atmosfääriõhu jaoks aga  $10^{20}$  oomi. Ometigi tasakaalustab aeroioonide juhtivusvool Maa atmosfääris äikeste poolt genereeritud  $1000\text{--}2000$  amprise maapinnalt ionosfääri kantud elektrivoolu. Niiviisi on aeroioonid globaalse atmosfäärielektriahela jaoks oluline tegur ja uurimisobjekt.

Maapinnalähedases õhus tekib *ca*  $50\%$  aeroioonidest radooni ja radooni tütar-elementide lagunemisega kaasneva radioaktiivse kiirguse toimetel. Selle tõttu on aeroioonide hulk õhu radoonisisaldusega tugevalt korreleeritud. Algses ionisatsioonaktis tekkinud elektron ja positiivneioon ühinevad juba esimese mikrosekundi jooksul gaasimolekulidega ja esimese millisekundi jooksul liitub algse molekulaarse iooniga veel hulk vee ja õhu lisandgaaside molekuli. Niiviisi moodustunud ja kuni mõnekümnest molekulist koosneva klasteriooni eluiga on paar minutit [Tammet jt, 2006]. Selle aja jooksul jõuab ta endasse haarata ka selliste õhu lisandgaaside molekule, mille kontsentratsioon on alla  $1 \text{ ppb}$ . Väiksem osa klasterioonidest hävib positiivse ja negatiivse aeroiooni kohtumisel toimivas rekombinatsioonaktis, enamik klasterioone aga kohtub enne seda mõne õhus hõljuva aerosooliosakesega ja ühineb sellega. Kui aerosooliosake on algselt neutraalne, siis kohtumise tulemusena tekib laetud osake. Kuni  $100$  nanomeetrise läbimõõduga laetud osakeste liikumine on oluliselt mõjutatud elektriväljadest. Sellised osakesed on samuti aeroioonid ja neid võib nimetada aerosoolioonideks. Aerosoolioonide õhutakistus on suur ja nende osa õhu elektrijuhtivuses on teisejärguline.

Aeroiooni massi otsest massispektromeetrilist mõõtmist raskendab vajadus aeroioon normaalarõhuga õhust vaakumisse viia. Selleks võimalised aparaadid on kallid ning aeroiooni koostise võimalik muutumine vaakumisse paisuvas õhujoas jätab kahtluse, et mõõdetud objekt ei ole identne atmosfääriõhus olnud aeroiooniga. Teavet aeroioonide suuruse kohta saadakse tavaliselt mõõtes nende elektrilist liikuvust, mis tähendab triivi keskmist kiirust ühikulises elektriväljas. Klasterioonide liikuvus on kuni  $3 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ , aerosoolioonide liikuvus võib olla kuni  $10000$  korda väiksem. Liikuvuse järgi saab hinnata ka aeroiooni läbimõõtu. Aparaat, mis sorteerivad aeroioone liikuvuse järgi, nimetatakse liikuvusanalüsaatoriteks ehk liikuvusspektromeetriteks.

Aeroioonid põrkuvad õhus leiduvate gaaside molekulidega tuhandeid kordi mikrosekundis. Põrgeteahelas toimub palju keemilisi reaktsioone ja millisekundites mõõdetava vanusega aeroioonide liikuvusspektromeetrial on rakendusi analüütilises keemias [Eiceman, Karpas, 2005]. Millisekundiliste aeroioonide kontsentratsioon ja nende poolt kantav elektrivool võib olla suur ning selle mõõtmine lihtne. Kontsentratsioon kahaneb pöördvõrdeliselt aeroioonide eluea ruuduga. Järgnevas on tähelepanu suunatud atmosfääriõhus looduslikul teel tekkinud aeroioonidele, mille eluiga on kümnetes ja sadades sekundites ning kontsentratsioon väga väike.

## AEROIOONID, ATMOSFÄÄRIAEROSOOOL JA KLIIMA

Aerosooliteaduses uuritavate osakeste läbimõõdu alammäär on mõõtmismetodite arenedes järk-järgult langenud ja tänapäeval käsitletakse ka klasterioone kui atmosfääriaerosooli osa. Hörrak jt [2000] uurisid komponentanalüüsi meetodit kasutades suuremahulise vaatlusmaterjali baasil aeroioonide erinevate suurusgruppide omavahelist korreleeruvust. Jämedas jaotuses liigitati aeroioonid kolme suurde gruppi, mille puhul korrelatsioon on tugevalt positiivne grupi sees ning puudub või on negatiivne kahe grupi vahel. Eralduspiirid on 1,6 nm (liikuvus  $0,5 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ) ja 7,5 nm (liikuvus  $0,03 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ). See on päris heas kooskõlas aeroioonide varasema intuiitiivse klassifikatsiooniga [Israël, 1970] kergeteks, keskmisteks ja rasketeks aeroioonideks. Eralduspiir 1,6 nm langeb kokku aeroioon-molekul pörgete iseloomu muutumise piiriga. Väiksemate aeroioonide sisemiste energianivoode vahed on soojusliikumise energiast suuremad ning pörked on elastsed. Suuremad aeroioonid assimileerivad soojusenergiat ning pörked on mitteelastsed [Tammet, 1995].

Maa keskmise temperatuuri muutumist põhjustavad nii atmosfääri paisatavad kasvuhoonegaasid kui ka pilvkatte muutused. Pilvede mõju soojusvahetusele oleneb nende struktuurist. Ühest ja samast veehulgast võib saada palju peente tilkadega valgeid pilvi või ühe suure äikesepilve, millest võib sadada nii põlde kosutavat vihma kui saaki hävitavat rahet. Inimtegevus võib mõjutada pilvede struktuuri ja selle kaudu Maa kliimat enamgi kui kasvuhoonegaase õhku paisates. Atmosfääriaerosooli osakestel ja nende hulgas ka aeroioonidel on pilvede arengus oluline osa. Juba 19. sajandil tõestas lord Kelvin, et mida väiksem on tilk, seda raskem on auru kondenseerumine ja kiirem tilga aurumine. Kui tilga läbimõõt oleks sajandik mikromeetrit, siis peaks ta silmapilkselt aurustuma ka küllastunud niiskusega õhus. Näis, et uute pilvetilkade tekkimine ja kasvamine alates selgest õhust pole üldse võimalik. Paradoksi esialgne lahendus leiti ruttu: õhk sisaldab alati mõne sajandikmikromeetri läbimõõduga tahkeid osakesi, mida hakati nimetama kondensatsioonituumadeks. Uued pilvetilgad tekitavad kondensatsioonituumadel. Kui õhus on palju kondensatsioonituumi, siis saame teatud hulgast veeaurust palju pisikesi tilku, mis jäävad õhku hõljuma. Kui kondensatsioonituumi on vähe, siis saab samast hulgast veeaurust vähe suuri tilku, mis käituvad hoopis teistviisi. Niiviisi juhivad kondensatsioonituumad pilvede ja sademete arengut ning selle kaudu maakera kliimat.

Kondensatsioonituumade avastamine ei ole Kelvini paradoksi täielik lahendus, vaid ainult lahenduse edasilükkamine. Pilved ja vihm sadestavad õhus leiduvad kondensatsioonituumad atmosfäärist ruttu välja ja nüüd peab küsima, kuidas tekivad uued kondensatsioonituumad? Vastust otsitakse juba enam kui sada aastat. Inglise füüsik C. T. R Wilson leidis Nobeli preemiaga pärjatud töös, et veeauru väga suure üleküllastuse puhul võivad kondensatsioonituumadena käituda ka tavalised klasterioonid, mille tekkemehhanism on lihtne ja arusaadav. Paraku ei tule aga looduslikus õhus piisavalt kõrget üleküllastust kunagi ette ja vee kondenseerumiseks on tarvis klasterioonist kümneid korda

suurema läbimõõduga osakesi. Molekulaarklastri kasvamist takistab aga ikka seesama eelnimetatud Kelvini efekt.

Kondensatsioonituumade tekkimise ehk nukleatsiooni uurimine on kujunenud atmosfäärifüüsika iseseisvaks haruks, mille üheks juhtivaks keskuseks on Helsingi ülikooli füüsikaosakond. Eestis alustati juba kaheksakümnendate aastate keskel aeroioonide liikuvusjaotuse pidevat seiret paljukanaliliste liikuvusspektromeetrite [Tammet jt, 1987] abil Pärnumaal asuvas Tahkuse Õhuseirejaamas. Seal avastati 1–2 nm läbimõõduga aeroioonide tekkepuhangud [Tammet jt, 1988], mille füüsikalis-keemiline olemus on sama kui viimastel aastatel atmosfääriaerosooliuringute tähelepanu keskmesse tõusnud nukleatsioonipuhangutel. Helsingi-Tartu koostöös saadud tulemused näitavad, et intensiivne nukleatsioon toimub tavaliselt mõnetunniliste puhangutena. Tekkivate osakeste arengu mehhanism ühe ja kolme nanomeetri vahel on aga uurijatele väljakutseks tänaseni. Üha ilmsem on, et selles mängivad oma osa elektrilaengud. Aeroioonidest kondensatsioonituumade tekkimist nimetatakseioon-indutseeritud nukleatsiooniks. Kui ioon-indutseeritud nukleatsiooni osatähtsus atmosfääris osutub piisavalt suureks, siis tähendab see, et aeroioonid võivad oluliselt mõjutada maakera kliimat. Õhu ionisatsioon on aga tundlik nii inimtegevuse kui kosmosest tulevate mõjutuste suhtes.

Inimtegevuse tulemustest mõjutavad atmosfääriõhu ionisatsiooni pinnase töötlemisega kaasnevad loodusliku radooni emissiooni muutused ning tuumaelektrijaamades ja jäätme-käitlustehastes vabanev radioaktiivne gaas Krüpton-85. Looduslikest teguritest mõjutab ionisatsiooni, seda eriti suurematel kõrgustel, kosmosest tulev ioniseeriv kiirgus, mis varieerub ajas olenevalt Päikese pinna seisundist. Taani teadlaste H. Svensmark'i ja E. Friis-Christensen'i 1997. aastal ilmunud artikkel [Svensmark, Friis-Christensen, 1997] vallandas ägeda teadusliku diskussiooni teemal: kuidas Päikese pinna seisund võib mõjutada atmosfääri ionisatsiooni kaudu Maakera pilvkatet ja kliimat. Diskussioon jätkub ja on jõudnud ka populaarteaduslikku kirjandusse [Svensmark, Calder, 2007]. Atmosfäärifüüsikud pole aga seni üksmeelele jõudnud, kuivõrd Svensmarki hüpotees väärib tunnustamist või kriitikat [Ram jt, 2009; Bondo jt, 2010; Kulmala jt, 2010].

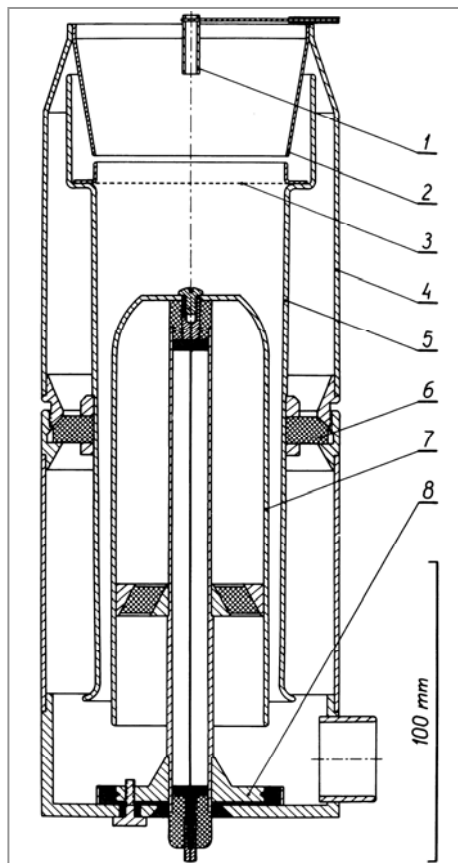
## LIKUVUSSPEKTROMEETRIA MEETODID

Analüütilises keemias kasutatakse millisekundites mõõdetava vanusega klasterioonide uurimiseks enamasti lennuajaspektromeetreid. Selline aparaat sisaldab homogeense elektrivälja ja seisva kandevegaasiga kambrit. Ioonid juhatakse läbi elektriliselt lukustatava ja avatava võre-kombinatsiooni impulsina kambri ühte otsa. Tugevas elektriväljas triivides jõuavad erineva liikuvusega ioonid kambri teises otsas asuvalle kollektorelektroodile erinevatel aegadel ning ajas muutuvat voolutugevust registreerides saab määrata ioonide jaotuse liikuvuse järgi.

Katsed kasutada lennuajaspektromeetreid looduslike aeroioonide uurimiseks atmosfääris ei ole andnud häid tulemusi. Lennuajaspektromeetrite tundlikkus langeb koos aeroioonide eluea ruuduga ja selleks, et saada atmosfäärimõõtmisteks piisavat signaali, peaks triivikambri suurust mõõtma meetrites. Klasterioonide mõõtmine on tingimisi võimalik, aerosoolioonide korral aga osutub lennuajaspektromeetria hoopis sobimatuks.

Atmosfääri looduslike aeroioonide uurimiseks kasutatakse aspiratsiooni- ehk läbivoolumeetodit. Lihtsaimad aspiratsioonimeetodil töötavad riistad on integraalsed õhu elektrijuhtivuse mõõtjad ja aeroioonide loendurid, mida nimetatakse vahel ka Gerdieni riistadeks. Põhjaliku ülevaate võib leida raamatutest [Israël, 1970; Tammet, 1970]. Raamatust [Tammet, 1970] kopeeritud joonisel 1 on esitatud Tartu konstrueeritud integraalse aeroioonide loenduri mõõtekondensaatori ristlõige. Samasuguse või väga samase mõõtekondensaatoriga loendureid on valmistatud ligi kaheksajale uurimisasutusele endises Nõukogude Liidus ja idabloki maades [Matisen jt, 1992].

Mõõtekondensaator ise on telg-sümmeetriline. Väline korpus (4) varjestab sisemisi elektroode elektriliste häirete eest. Õhk imetakse kondensaatorisse läbi koonilise varjestuslehtri (2) ülalt. Edasi voolab õhk läbi mõõtekondensaatori sisemist elektrivälja piirava metallvõrgu (3) aeroioonide kollektori ülesannet täitvasse kergelt koonilisse väliskattesse (5). Aeroioonide sadestamiseks antakse sisekattele (7) pinge, mille polaarsust saab muuta ja mida saab reguleerida väärtuseni kuni 780 V. Pinget ja õhuvoolu kiirust reguleerides seatakse sobivaks piirliikuvus, millest kõrgema liikuvusega ioonid 100% sadestatakse. Madalama liikuvusega aeroioone sadestatakse osaliselt ja võrdeliselt nende liikuvusega. Piirliikuvuse reguleeritavus  $0,0001 - 8 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$  võimaldab integraalse loenduri abil uurida ka aeroioonide liikuvusjaotust, seda aga ainult väga jämedas jaotuses. Kitsa liikuvusfraktsiooni kontsentratsiooni määramiseks peaks integraalse kon-

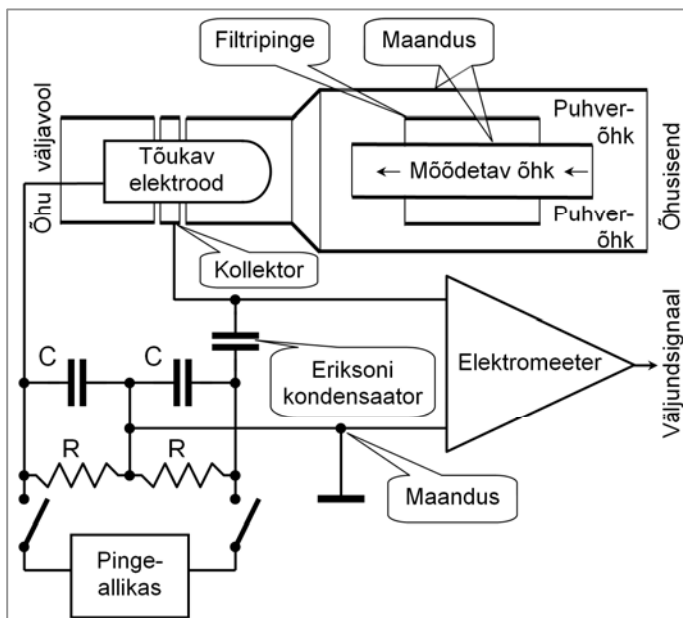


Joonis 1.  
Integraalse aeroioonide loenduri silindrilise mõõtekondensaatori ristlõige.

densaatori volt-ampertunnusjoonest arvutama diferentse. Aeroioonide kontsentratsioon aga varieerub ajas kiiresti ja diferentside mõõtemääramused on lubamatult suured.

Liikuvusjaotuse uurimiseks kasutatakse diferentsiaalseid aspiratsioonkondensaatoreid. Aerosooliuuringutes on üldkasutatav teist järku diferentsiaalne mõõtekondensaator, mida tähistatakse sageli tähekombinatsiooniga DMA (*Differential Mobility Analyzer*). Terminid “integraalne”, “esimest järku diferentsiaalne” ja “teist järku diferentsiaalne” võeti kasutusele artiklis [Tammet, 1960] ja nad kujunesid hiljem üldkasutatavaks tänu artiklile [Hoppel, 1981].

DMA põhimõtet selgitaval joonisel 2 on esitatud esimese pideva skaneerimisega liikuvusspektromeetri [Tammet jt, 1977] skeem. Suurem osa õhuvoolust läbib puhverõhu filtrit, kus aeroioonid eemaldatakse elektrivälja abil.



Joonis 2.  
Teist järku telg-  
sümmeetrilise dife-  
rentsiaalse mõõte-  
kondensaatoriga  
aeroioonide spekt-  
romeetri UT-7509  
põhimõtteskeem.

Mõõdetav õhk siseneb läbi elektrivälja varjestava keskmise toru mõõtekondensaatorisse, kus tõukava elektroodi poolt tekitatud elektrivälja kallutab valitud liikuvusega aeroioone nii, et suure liikuvusega aeroioonid sadestuvad juba enne kollektorit ja väikese liikuvusega aeroioonid läbivad mõõtekondensaatori tõukava elektroodi pinna lähedalt üldse sadestumata. Elektromeetriga ühendatud kollektorile sadestuvad täielikult ainult valitud aeroioonid, mille liikuvust nimetatakse ülekandefunktsiooni ehk aparaadifunktsiooni keskliikuvuseks. Keskliikuvus sõltub tõukava elektroodi kallutavast pingest. Ühe kollektoriga DMA puhul on liikuvusjaotuse mõõtmiseks tarvis teha hulk üksikmõõtmisi ülekandefunktsiooni keskliikuvuse erinevate väärtuste juures. Seda protsessi nimetatakse skaneerimiseks. Kirjeldatavas spektromeetris laetakse

kondensaatorid C algselt kõrge pingeni. Siis avatakse lülitid ja lastakse kallutatavat pinget muutuda kondensaatorite eksponentsiaalse tühjenemise käigus. Mõõtmist häirib pinge muutumisel kollektorile elektrostaatiliselt indutseeritud vool, mis ületab suurelt aeroioonide voolu. Vaadeldud riistas on lahenduseks Eriksoni [1921] meetod indutseeritud voolu kompenseerimiseks sildlülituse abil. Spektromeeter UT-7509 on tänaseni kasutusel ja sellega on saadud rida tulemusi õhu lisandgaaside mõjust aeroioonide liikuvusjaotusele [Parts, Luts, 2004].

Atmosfääriuuringute puhul on aspiratsioon-spektromeetrite arendamisel üheks põhiülesandeks tundlikkuse ja lahutusvõime parandamine. Üks võimalus on kasutada ühes DMAs mitut kollektorit. Esimest Tartus ehitatud mitmekanalist liikuvusspektromeetrit kirjeldatakse artiklis [Tammet jt, 1973]. Tahkuse Õhu-seirejaamas kasutatav kolmest mitmekanalilisest spektromeetrist koosnev süsteem [Tammet jt, 1987; Hörrak, 2001] oli pikka aega maailmas kõige täiuslikum ja produktiivsem aeroioonide uurimise seade ja see ka täna kasutusel. Kaasajal kõige täiuslikum mitmekanaliline liikuvusspektromeeter NAIS [Mirme jt, 2007] on kujunenud atmosfääriaerosooli nukleatsiooniuuringute Helsingi koolkonna üheks põhiinstrumendiks [Kulmala, Tammet, 2007]. Selle aparaadiga tehakse pidevaid mõõtmisi Soomes, Rootsis ja Eestis ning mõõtmiskampaaniaid on korraldatud ka 3,5 km kõrgusel Šveitsi Alpides, Atlandi ookeanil, Antarktises ja Austraalias.

#### SKANEERIV LIIKUVUSSPEKTROMEETER SIGMA

Skaneeriv spektromeeter jääb mitmekanalilisele alla informatsiooni kogumise kiirusele, on aga lihtsam ja ühtaegu vaba kahest mitmekanalilise spektromeetri puudusest. Üks nendest on kaliibrimise tülisus, sest iga kanal vajab eraldi kontrollmõõtmist ja mitmekanalilise spektromeetri kaliibrimiseks on tarvis tervet standardaeroioonide süsteemi [Asmi jt, 2009]. Skaneeriva spektromeetri kaliibrimiseks piisab aga ühest standardaeroioonide allikast. Selle tõttu kasutati mitmekanaliliste spektromeetrite kontrollkaliibrimisel skaneerivat spektromeetrit kui referentsriista [Asmi jt, 2009]. Teiseks on mitmekanalise spektromeetri korral raske kindlaks teha, kas mingi lokaalne iseärasus registreeritud spektris on füüsikalist päritolu või on see spektromeetri üksikkanali rikke tulemus. Skaneerivas spektromeetris mõõdetakse kogu liikuvusspekter ühe ja sama elektromeetri abil ja analoogilist probleemi ei teki.

Spektromeetri SIGMA (*Symmetric Inclined Grid Mobility Analyzer*) eelkäijateks on IGMA (*Inclined Grid Mobility Analyzer*) [Tammet, 2003] ja BSMA (*Balanced Scanning Mobility Analyzer*) [Tammet, 2006]. Kõigi kolme liikuvuspiirkond on ühtviisi  $0,032\text{--}3,2\text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  ja osakeste diameetrite piirkond  $0,4\text{--}7,5\text{ nm}$ . IGMA on esimene aeroioonide spektromeeter, milles realiseeriti Loscertalese [1998] kaldväljameetod. Seda aparaati kasutatakse atmosfääriaerosooli nukleatsiooni uurimiseks Minnesota Ülikoolis [Iida jt, 2006]. IGMA puhul kogutakse liikuvuse järgi eraldatud aeroioonid autonoomses elektrifilt-



ris, mis on kallutavast väljast varjestatud. BSMAAs kogutakse aeroioone aga otse kallutava elektrivälja toimet samuti kui joonisel 2 kujutatud spektromeetris. Kaasnev elektrostaatiliselt indutseeritud häiresignaal kompenseeritakse kahest mõõtekondensaatorist koosneva Komarovi mahtuvussilla abil [Komarov jt, 1961]. BSMA pikaajalise kasutamise kogemused Soomes Hyytiäläs ja Eestis Tartus näitavad, et kõrge niiskuse korral on mahtuvussilla ebastabiilsusest tulenevad juhuslikud mõõtmisvead häirivad. Sellepärast kasutatakse SIGMAAs varjestatud kollektorfiltreid, nagu ka IGMA puhul.

Spektromeetri projekteerimisel kasutati numbrilist mudelit, mis lahendas Laplace ülesande Jacobi-Seideli meetodi abil 0,1 mm sammuga võrgul. Järgnevalt arvutati aeroioonide trajektoorid ning vood ja lõpptulemusena aparaadifunktsioon, mis näitab monomobiilsete aeroioonide kollektorivoolu sõltuvust kallutavate elektrodide pingetest. Numbriline mudel võimaldab elektrodide asendeid suvaliselt muuta ja arvutikatsete tulemusena leiti põhimõtteliselt uudne võimalus koguda nii positiivseid kui negatiivseid aeroioone üheaegselt ühest ja samast õhujoast. See välistab tavakohase kahe õhusisendi korral erinevatest sissetõmbeavadest põhjustatud võimaliku vea.

Joonisel 3 näidatud tasaparalleelsetest plaatidest koosneva mõõtekondensaatori pikkus on 36 cm ja kõrgus risti joonisega 24 cm. Õhk siseneb läbi ühemillimeetriteliste avadega võre, mis takistab putukate ja ebemete pääsu mõõtekondensaatorisse. Suur õhukulu (ca 34 liitrit sekundis) minimeerib aeroioonide proovivõtmist häiriva välise elektrivälja toime. Mitmekanaliste spektromeetritega võrreldes on paljukordselt suurema õhukulu olulisem põhjus aga vajadus koguda piisaval hulgal aeroioone aparaadis, milles on vaid kaks elektromeetrit.

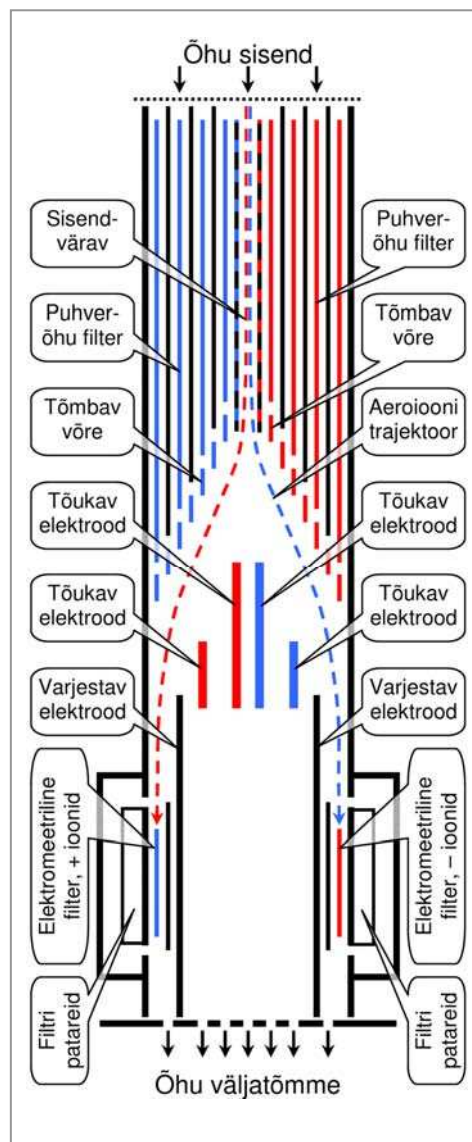
Sisendvõre läbinud õhk satub paljudest plaatidest koosnevasse eelfiltrisse. Eelfiltri keskmist sektsiooni saab külgsuunas pingestades või maandades elektriliselt lukustada või avada. Enamus õhust läbib pingestatud plaatidega puhverõhu filtreid, mis sadestavad välja ka suure osa mõõtmispiirkonnast madalama liikuvusega aeroioone. Tulemusena mõõdavad elektromeetritelised kollektorfiltrid värvat läbinud ja elektrodide poolt filtrisse kallutatud kitsas vahemikus asuva liikuvusega aeroioonide hulka.

Esimeses kaldväljaga spektromeetris IGMA olid nii tõukav kui tõmbav elektrood valmistatud perforatsiooniga metall-lehtedest. Katsed näitasid, et kaldasendis perforatsiooniga läbinud õhuvool on tugevalt moonutatud ja aeroioonide liikumist ei õnnestu piisavalt täpselt numbriliselt modelleerida. SIGMA tõmbav võre on aga ribikonstruktsiooniga ega moonuta õhuvoolu. Tõukavate elektrodide asendid optimeeriti arvutimudeli abil. Elektromeetritega ühendatud kollektorfiltritesse kallutatud aeroioonid sadestatakse filtri sisemises elektriväljas. Kollektorelektrood pingestatakse filtri külge kinnitatud 240 V patarei abil. Teades voolutugevuse sõltuvust tõmbava võre ja tõukavate elektrodide vahelisest kallutavast pingest, saab arvutada aeroioonide jaotuse liikuvuse järgi. Lisaks on spektromeeter varustatud ka temperatuuri- ja õhurõhu anduritega

ning nende andurite näite kasutades arvutatakse liikuvusjaotuse järgi ka aeroioonide diameetriaotus.

Kallutuselektroodide pinge allikaks on 6 kV väljundiga isoleeritud pingemuundur, mille toidet saab juhtarvuti abil sisse ja välja lülitada. Pingemuunduri väljundisse on lülitatud kondensaatorid ja täppistakistid nii, et pärast toite väljalülitamist hakkab pinge eksponentsiaalselt kahanema ajateguriga 3,8 sekundit. 20-sekundiline periood on piisav selleks, et pingestada kallutuselektroodid, registreerida kondensaatorite tühjenemise käigus 100 korda sekundis nii kallutuspinged kui elektromeetrite näidud, ning lõpuks töödelda ja salvestada kogutud andmed. Mõõtmisprotsessis tehakse regulaarselt (tavaliselt iga kolmas skaneerimine) ka suletud sisendväravaga mõõtmisi. See võimaldab hiljem arvutuslikult elimineerida vigu, mille põhjuseks on mõninga hulga madala liikuvusega aeroioonide pääsemine kollektorisse läbi puhverõhu filtri ning kallutuspinge muutumisel elektrostaatiliselt indutseeritud häiresignaal.

Pikaajalised katsetused näitasid, et standardsete 5-minutiliste mõõtmistsüklite puhul on aeroioonide liikuvusfraktsioonide juhusliku vea standardhälve ka halbade välistingimuste (uduvihm ja kõrge niiskus) korral  $ca 1 \text{ cm}^{-3}$ , mis on ligi suurusjärgu parem kui seni kasutusel olnud skaneeriva spektromeetri BSMA puhul.



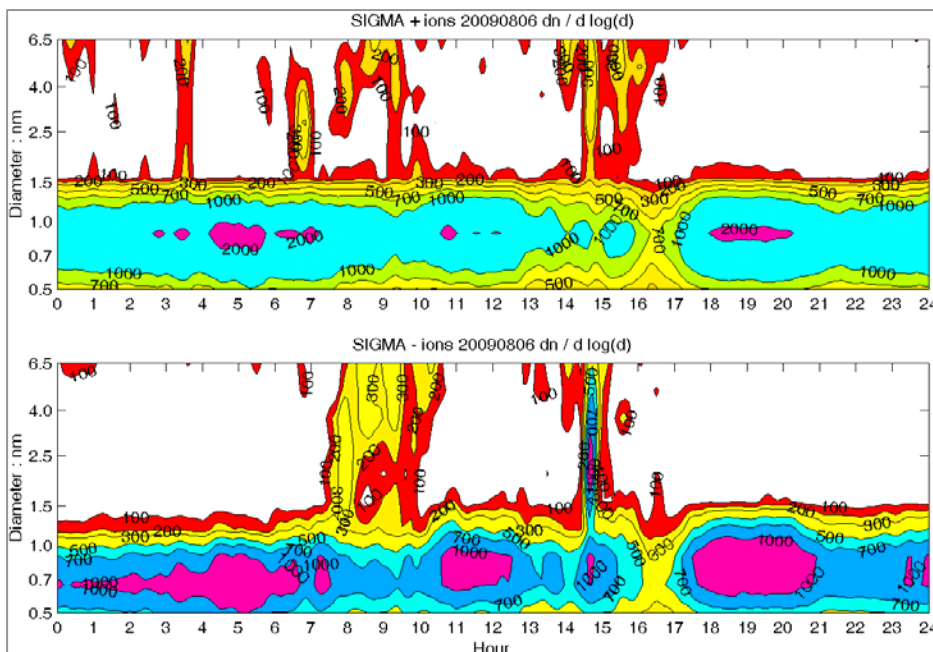
Joonis 3.

SIGMA mõõtekondensaatori lõige üldvaates.

Positiivsed elektrodid on kujutatud punase, negatiivsed elektrodid sinise ja nullilähedase potentsiaaliga elektrodid musta värviga. Vahelduva värviga väravaelektroodid võivad olla neutraalsed (värav avatud) või pingestatud (värav suletud).

## MÕÕTMISNÄIDE

Joonisel 4 on kujutatud aeroioonide mõõtmajaotuse evolutsiooni looduslikus õhus ühe ööpäeva jooksul ja joonis 5 esitab samu mõõtmistulemusi valitud viietunnilises ajavahemikus üksikasjalikumalt. Diagrammi isojoontel näidatud arvud on aeroioonide kontsentratsiooni jaotusfunktsiooni väärtused osakeste läbimõõdu kümnendlogaritmi järgi. Jaotusfunktsiooni väärtusi mingil ajamendil näitab vastava vertikaali värvijaotus.



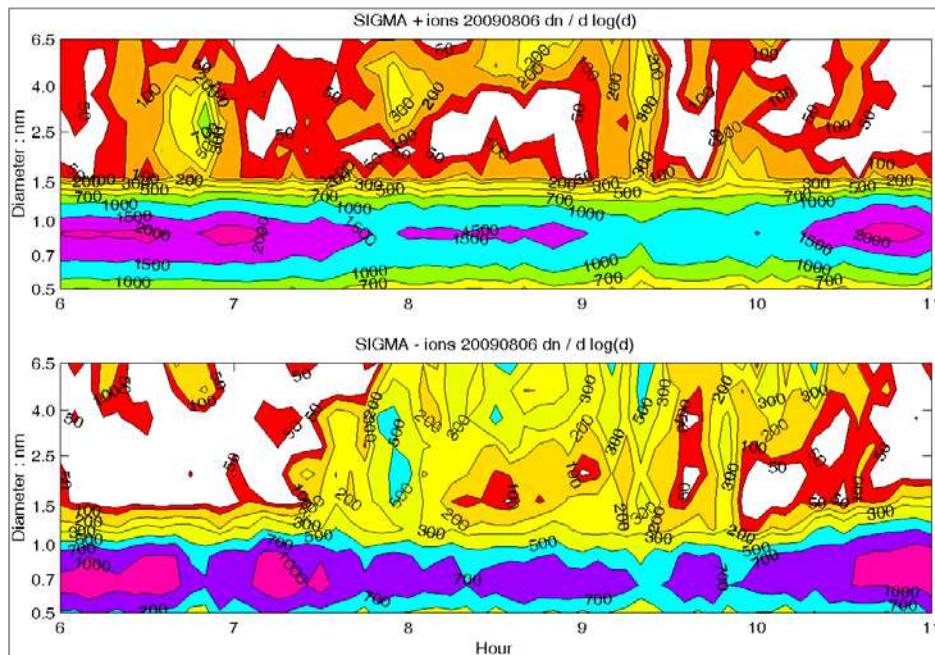
Joonis 4.

Aeroioonide mõõtmajaotuse evolutsioon 6. augustil 2009. a vaatluskohas 58°05'39" N & 26°43'09" E.

Ülemine diagramm näitab positiivsete ja alumine negatiivsete osakeste diameetrite jaotust.

Kõige silmatorkavam protsess on iseloomulik nukleatsioonipuhang ajavahemikus 7.30 kuni 10.30. Võib tähele panna, et negatiivseid 2–5 nm läbimõõduga osakesi tekkis selles puhangus positiivsetega võrreldes oluliselt rohkem. Neutraalseid osakesi liikuvusspektromeeter ei näita. Kui osakesed oleks sündinud neutraalsed, siis peaks klasterioonidega pörkudes tekkima enam-vähem samavõrra nii negatiivselt kui positiivselt laetud nanomeetrosakesi. Negatiivsete osakeste suur ülekaal vihjab ebasümmeetriliseleioon-indutseeritud nukleatsioonile, mille puhul osakesed tekivad negatiivsete klasterioonide kasvamisel üle kriitilise 1,5 nm piiri. Aja jooksul kasvamine jätkub,

mõned osakesed neutraliseeruvad ja mõned võivad ka ümber laaduda. Diagrammil näha olev “samm” on veidi paremale kaldu (vt joonis 5), põhjuseks tekkivate nanomeeterosakeste jätkuv kasvamine. Kasvu kiiruseks näib olevat tublisti üle kümne nanomeetri tunnis, mis on veidi üle tavakeskmise.



Joonis 5.

Üksikasjalikum väljavõte joonisel 4 kujutatud aeroioonide mõõtmejaotuse evolutsiooni diagrammist.

Teise silmatorkava protsessi (ajavahemik 14.20–15.00) põhjuseks oli hoovihm. Maapinnale langevate veetilkade laialipritsimine tekitab valdavalt negatiivseid nanomeeterioone. Balloelektriliseks efektiks nimetatud nähtust tuntakse ja uuritakse juba üle saja aasta, kuid selle füüsikalisest olemusest pole ikka päriselt aru saadud. Vee pritsimine ei tekita klasterioone, vaid otse nanomeeterosakesi. Uuemate katsetulemuste [Tammet jt, 2009] järgi osutuvad 2–3 nm läbimõõduga osakesed eriliselt stabiilseteks, mis näib olevat vastuolus Kelvini teooriaga. Ühe hüpoteesi kohaselt tekitab balloelektriline efekt aga erilisi 2,5 nm läbimõõduga stabiilseid superklastreid, milles vee molekulid korrastuvad nagu ikosaeedriline kristall [Chaplin, 1999].

Joonisel 4 on näha veel kaks huvitavat ja teineteisest oluliselt erinevat protsessi kell 3.30 ja kell 6.45, mille puhul tekivad ainult positiivsed nanomeeterosakesed. Nende protsesside seletamine ei ole tänasele teadusele veel jõukohane.

## TÄNUAVALDUSED

Autor tänab kõiki kolleege, kelle kaastöö oli tulemuste saavutamisel oluline. Eriline tänu kuulub Jaan Salmile, Eduard Tammele ja Urmas Hörrakule ning Helsingi Ülikooli aerosooliuuringute juhile Markku Kulmalale. Uurimistööd toetasid TKN sihtprogramm SF0180043s08 ja ETF grant 8342.

## KIRJANDUS

- Asmi, E., Sipilä, M., Manninen, H. E., Vanhanen, J., Lehtipalo, K., Gagné, S., Neitola, K., Mirme, A., Mirme, S., Tamm, E., Uin, J., Komsaare, K., Attoui, M., Kulmala, M. (2009). Results of the first air ion spectrometer calibration and intercomparison workshop. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 141-154.
- Bondo, T., Enghoff, M. B., Svensmark, H. (2010). Model of optical response of marine aerosols to Forbush decreases. *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 2765-2776.
- Chaplin, M. F. (1999). A proposal for the structuring of water. *Biophys. Chem.*, 83, 211-221.
- Charry, J. M., Kavet, R. I. (1987). *Air ions: physical and biological aspects*. CRC Press, Boca Raton, FL.
- Eiceman, G. A., Karpas, Z. (2005). *Ion Mobility Spectrometry*. CRC Press, Boca Raton, FL.
- Erikson, H. A. (1921). The change of mobility of the positive ion with age. *Phys. Rev.*, 18, 100-101.
- Harrison, R. G., Tammet, H. (2008). Ions in the terrestrial atmosphere and other solar system atmospheres. *Space Sci. Rev.*, 137, 107-118
- Hoppel, W. A. (1981). The use of differential mobility analyzers of second order in determining the aerosol size distribution. *J. Aerosol Sci.*, 12, 55-57.
- Hörrak, U. (2001). *Air ion mobility spectrum at a rural area*. Dissertationes Geophysicales Universitatis Tartuensis, 15. Tartu Univ. Press, Tartu.
- Hörrak, U., Iher, H., Luts, A., Salm, J., Tammet, H. (1994). Mobility spectrum of air ions at Tahkuse Observatory. *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 99, 10697-10700.
- Hörrak, U., Salm, J., Tammet, H. (2000). Statistical characterization of air ion mobility spectra at Tahkuse Observatory: Classification of air ions. *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 105, 9291-9302.
- Iida, K., Stolzenburg, M., McMurry, P., Dunn, M. J., Smith, J. N., Eisele, F., Keady, P. (2006). Contribution of ion-induced nucleation to new particle formation: Methodology and its application to atmospheric observations in Boulder, Colorado. *J. Geophys. Res.*, 111, D23201.
- Israël, H. (1970). *Atmospheric electricity, vol. I*. Israel Program for Sci. Transl. & NSF, Jerusalem.

- Komarov, N. N., Kuzmenko, M. D., Seredkin A. A. (1961). Counter of atmospheric ions. *Izv. AN SSSR, Ser. Geofiz.*, 1875-1881.
- Kulmala, M., Riipinen, I., Nieminen, T., Hulkkonen, M., Sogacheva, L., Manninen, H. E., Paasonen, P., Petäjä, T., Dal Maso, M., Aalto, P. P., Viljanen, A., Usoskin, I., Vainio, R., Mirme, S., Mirme, A., Minikin, A., Petzold, A., Hörner, U., Plöß-Dülmer, C., Birmili, W., Kerminen, V.-M. (2010). Atmospheric data over a solar cycle: no connection between galactic cosmic rays and new particle formation. *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1885-1898.
- Kulmala, M., Tammet, H. (2007). Finnish-Estonian air ion and aerosol workshops. *Boreal Environ. Res.*, 12, 237-245.
- Loscertales, I. G. (1998). Drift differential mobility analyzer. *J. Aerosol Sci.*, 29, 1117-1139.
- Matisen, R., Miller, F., Tammet, H., Salm, J. (1992). Air ion counters and spectrometers designed in Tartu University. *Acta Comm. Univ. Tartu*, 947, 60-67.
- Mirme, A., Tamm, E., Mordas, G., Vana, M., Uin, J., Mirme, S., Bernotas, T., Laakso, L., Hirsikko, A., Kulmala, M. (2007). A wide-range multi-channel Air Ion Spectrometer. *Boreal Environ. Res.*, 12, 247-264.
- Mitt, A. (1946). Molioonide tiheduse kõikumine atmosfääris Tartus 1937. a. *Acta Comm. Univ. Tartu, Füüsika ja keemia*, 2, 3-42.
- Parts, T.-E., Luts, A. (2004). Observed and simulated effects of certain pollutants on small air ion spectra: I. Positive ions. *Atmos. Environ.*, 38, 1283-1289.
- Ram, M., Stolz, M. R., Tinsley, B. A. (2009). The terrestrial cosmic ray flux: Its importance for climate. *EOS, Trans. Am. Geophys. Union*, 90, 44, 397-398.
- Reinet, J. (1958). Atmosfääri ionisatsiooni muutustest Tartus aastase perioodi vältel. *Acta Comm. Univ. Tartu*, 59, 71-107.
- Svensmark, H., Calder, N. (2007). *The Chilling Stars: A New Theory of the Climate Change*. Icon Books, Cambridge.
- Svensmark, H., Friis-Christensen, E. (1997). Variation of cosmic ray flux and global cloud coverage-a missing link in solar-climate relationships. *J. Atmos. Terr. Phys.*, 59, 1225-1232.
- Tammet, H. (1970). *The Aspiration Method for the Determination of Atmospheric Ion-Spectra*. Israel Program for Sci. Transl. & NSF, Jerusalem.
- Tammet, H. (1995). Size and mobility of nanometer particles, clusters and ions. *J. Aerosol Sci.*, 26, 459-475.
- Tammet, H. (1998). Air ions. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 79th edition, CRC Press, Boca Raton, Ann Arbor, London, Tokyo, Sect. 14, 32-34.

- Tammet, H. (2003). Method of inclined velocities in the air ion mobility analysis. Proc. of the 12th Int. Conf. on Atmospheric Electricity, Vol. 1, Versailles, 399-402.
- Tammet, H. (2006). Continuous scanning of the mobility and size distribution of charged clusters and nanometer particles in atmospheric air and the Balanced Scanning Mobility Analyzer BSMA. *Atmos. Res.*, 82, 523-535.
- Tammet, H., Hörrak, U., Kulmala, M. (2009). Negatively charged nanoparticles produced by splashing of water. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 357-367.
- Tammet H., Hörrak U., Laakso L., Kulmala M. (2006). Factors of air ion balance in a coniferous forest according to measurements in Hyytiälä, Finland. *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3377-3390.
- Tammet, H., Salm, J., Iher, H. (1988). Observation of condensation on small air ions in the atmosphere. *Atmospheric Aerosols and Nucleation. Lecture Notes in Physics*, Springer-Verlag, Vienna, 309, 239-240,
- Tammet, H. F. (1960). Contribution to theory of aspiration counters of air ions. *Izv. Acad. Nauk ser. geofiz.*, 1263–1270. (in Russian).
- Tammet, H. F. (1975). Dependence of the spectrum of small ion mobilities on the trace admixtures in air. *Acta Comm. Univ. Tartu*, 348, 3-15. (in Russian).
- Tammet, H. F., Hilpus, A. O., Salm, J. J., Üts, E. J. (1977). An air ion spectrometer for the detection of some admixtures in air. *Acta Comm. Univ. Tartu*, 409, 84-88. (in Russian).
- Tammet, H. F., Jakobson, A. F., Salm, J. J. (1973). Multi-channel automatic air ion spectrometer. *Acta Comm. Univ. Tartu*, 320, 48-75. (in Russian).
- Tammet, H. F., Miller, F. G., Tamm, E. I., Bernotas, T. P., Mirme, A. A., Salm, J. J. (1987). Instrumentation and methods for mobility spectrometry of small air ions. *Acta Comm. Univ. Tartu*, 755, 18-28. (in Russian).